

UN NOUVEAU PHÉNOMÈNE MAGNÉTIQUE : LE MÉTAMAGNÉTISME

Par Jean BECQUEREL.

Muséum National d'Histoire naturelle

I. — *Les pouvoirs rotatoires magnétiques des sidéroses et de la mésitite de Traversella, aux très basses températures.*

Il y a quelques années, l'auteur du présent mémoire et ses collaborateurs, MM. W. J. DE HAAS et J. VAN DEN HANDEL, ont étudié, en lumière monochromatique, les pouvoirs rotatoires magnétiques de deux sidéroses, dans la direction de l'axe optique¹. Les expériences ont été faites au Kamerlingh Onnes Laboratorium de Leyde, depuis la température ordinaire jusqu'aux très basses températures réalisables avec l'hélium liquide (1,5° K).

Je rappelle que les sidéroses sont des carbonates de fer, contenant une petite quantité de manganèse ; leur pouvoir rotatoire paramagnétique doit être attribué aux ions ferreux ; les ions manganoux, bien que magnétiques, ne peuvent contribuer à la rotation que pour une part négligeable, parce que le pouvoir rotatoire paramagnétique du carbonate de manganèse (dialogite) est excessivement faible, et qu'il n'y a que peu de manganèse dans les sidéroses.

Les deux cristaux étudiés, provenant, l'un de Saint-Pierre d'Allevard, l'autre de Lostwithiel, n'ont manifesté aux températures de l'hélium (4,2° à 1,5° K) qu'une très petite rotation paramagnétique, proportionnelle au champ magnétique et indépendante de la température.

Mais, aux températures de l'hydrogène liquide un très notable pouvoir rotatoire magnétique apparaît : à température constante, la rotation croît plus vite que l'intensité du champ, et elle augmente beaucoup quand la température s'élève de 14 à 20° K. Nous donnerons au paragraphe suivant l'explication de ces résultats.

Un fait singulier est qu'aux températures de l'hydrogène, les pouvoirs rotatoires magnétiques de ces deux sidéroses sont de grandeurs très différentes et que leurs variations thermiques, tout en gardant l'allure générale qui vient d'être indiquée, ne sont pas les mêmes. Ces différences m'ont engagé à étudier un autre cristal

1. *C. R. de l'Ac. des Sc.* 198, 1987 (1934). — *Comm. Lab. Leiden suppl.* n° 81a (1936).

Bulletin du Muséum, 2° s., t. XI, n° 1, 1939.

du même type, la mésitite de Traversella¹, qui est un carbonate de fer et de magnésium. L'ion Mg^{++} , n'étant pas magnétique, n'a aucune part directe dans l'aimantation, mais il peut avoir une influence indirecte, par sa présence dans le réseau cristallin.

Aux températures de l'hydrogène liquide, la rotation magnétique est beaucoup plus grande dans la mésitite que dans les sidéroses, malgré la moindre proportion de fer, et elle diminue légèrement quand la température s'élève de 14 à 20° K. Aux températures de l'hélium, il subsiste un pouvoir rotatoire magnétique, plus faible qu'aux températures de l'hydrogène mais cependant très notable, qui décroît à mesure qu'on abaisse la température : il y a donc un maximum entre 4,2° et 14° K. Dans l'intervalle 4,2° à 1,5° K, à température constante, la rotation croît plus vite que l'intensité du champ magnétique, de sorte que l'allure générale des variations observées aux températures de l'hélium ressemble à celle que présentent les sidéroses aux températures de l'hydrogène.

Un fait remarquable est l'apparition, aux températures de l'hélium, de deux caractères du ferromagnétisme : l'hystérèse et l'aimantation rémanente. Aux températures de l'hydrogène, il n'a pu être observé d'hystérèse ; toutefois quand le cristal a été porté dans un champ intense, il garde une légère aimantation rémanente. Une trace d'aimantation résiduelle a même encore été observée à 64° K. (azote en ébullition sous pression réduite).

Cependant, *il existe entre les effets observés et ceux que présentent les corps ferromagnétiques des différences capitales :*

1° Même dans un champ de 30.000 gauss, et même à la température de 1,5° K, on ne constate aucun indice d'une approche à une valeur de saturation : nous avons dit plus haut qu'au contraire, la rotation croît plus vite que le champ. Or, avec les ferromagnétiques, la saturation est pratiquement acquise dans des champs faibles.

2° La rotation magnétique reste de l'ordre de grandeur de celle qu'on peut attendre du paramagnétisme, comme le prouve la comparaison avec les rotations obtenues à des températures plus élevées, jusqu'à la température ordinaire.

3° L'hystérèse n'est apparente que si le cristal a été porté dans un champ magnétique de quelques milliers de gauss.

4° Le champ coercitif est de grandeur anormale ; il atteint 2.100 g. dans une des séries d'expériences.

J'ai adopté le mot « *métamagnétisme* » pour désigner ces effets.

1. Tous les minéraux étudiés sont des échantillons de la Collection du Muséum. M. le Professeur J. ORCEL a choisi de beaux cristaux, très transparents, sans macles, et bien homogènes, et m'a recommandé l'étude de la Mésitite. Je prie mon Collègue de trouver ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Quelques semaines avant nos expériences sur la mésitite, des phénomènes qui sont probablement métamagnétiques avaient été observés avec le chlorure de cobalt, aux températures de l'hydrogène liquide, par W. J. DE HAAS et B. H. SCHULTZ¹; nous y reviendrons à la fin du § X.

Les résultats expérimentaux concernant la mésitite ont fait l'objet d'une note récemment publiée². Le résumé qui vient d'être donné suffira pour la compréhension du présent mémoire, dont l'objet est de chercher s'il s'agit d'un aspect particulier du ferromagnétisme, ou d'un nouveau phénomène magnétique, et de préciser la cause du métamagnétisme.

II. — *Décomposition, par le champ cristallin, de l'état fondamental de l'ion ferreux dans les sidéroses et dans la mésitite.*

L'étude que nous abordons nécessite la connaissance des états énergétiques de l'ion ferreux dans le cristal. L'interprétation des résultats obtenus avec les sidéroses est évidente : l'existence, aux températures de l'hélium, d'un pouvoir rotatoire paramagnétique très faible, indépendant de la température et proportionnel au champ, prouve que le niveau fondamental (de plus basse énergie) de l'ion ferreux soumis au champ électrique cristallin, est non dégénéré (non magnétique); d'autre part les observations faites aux températures de l'hydrogène révèlent l'intervention, de plus en plus grande à mesure que la température s'élève, d'un second niveau d'énergie qui est dégénéré et magnétique. Les différences observées entre les deux sidéroses sont dues, au moins en majeure partie, à une variation, d'un cristal à l'autre, dans l'écart des deux niveaux.

De même, dans la mésitite, le niveau fondamental est non dégénéré, et le niveau suivant est magnétique. Il doit en être ainsi, car la structure cristalline est, suivant toute vraisemblance, la même que celle des sidéroses³; d'ailleurs une confirmation est donnée par le fait qu'aux températures de l'hélium, la rotation est une fonction croissante de la température, et est beaucoup plus petite qu'aux températures de l'hydrogène. La différence avec les sidéroses provient visiblement d'un écart beaucoup plus petit entre les deux plus bas niveaux d'énergie.

Une étude (inédite) de H. A. KRAMERS explique et précise ces conclusions. L'état fondamental de l'ion *libre* Fe^{++} est 5D ($3d^6$); l'aimantation d'un état 5D est détruite quant aux orbites; il reste une aimantation de 4 spins qui, dans le champ trigonal régnant

1. W. J. DE HAAS et B. H. SCHULTZ; *Journal de Physique*, janvier 1939.

2. Jean BECQUEREL et J. VAN DEN HANDEL; *Journal de Physique*, janvier 1939.

3. J'ai consulté à ce sujet MM. les Professeurs MAUGUIN et ORCEL.

autour de chaque ion Fe^{++} dans les sidéroses donne lieu à trois états : un non magnétique, et deux doublement dégénérés, comportant respectivement des moments magnétiques de 2 et de 4 magnétons de Bohr.

Nous admettrons que dans la mésilite, le plus élevé de ces deux niveaux dégénérés n'entre pas en jeu aux températures aussi basses que celles de l'hélium.

III. — *La loi de l'aimantation paramagnétique dans le cas d'une substance possédant un niveau fondamental non dégénéré suivi d'un niveau doublement dégénéré.*

Dans un champ magnétique, nous avons trois niveaux : un non dégénéré, et deux provenant de la décomposition du niveau doublement dégénéré.

Il suffit d'écrire les expressions des énergies et de leurs dérivées par rapport au champ, et d'appliquer la loi statistique de Boltzmann pour obtenir la loi d'aimantation.

Soient : σ l'aimantation spécifique, N le nombre des atomes (ou ions) de la substance dans l'unité de masse (ions ferreux dans le cas des sidéroses et de la mésilite), δ l'écart du niveau fondamental au niveau magnétique en l'absence de champ, T la température absolue, κ la constante de Boltzmann, H le champ extérieur, μ le moment magnétique correspondant à l'état dégénéré, ν_1 et ν_2 deux constantes provenant des termes en H^2 dans les expressions des énergies ; enfin posons :

$$(1) \quad a = \frac{\mu}{\kappa T} (H + H_m) \quad (H_m \text{ champ moléculaire}),$$

la loi d'aimantation est la suivante :

$$(2) \quad \sigma = N \frac{\nu_1 H + (\mu sh a + \nu_2 H ch a) e^{-\delta/\kappa T}}{1/2 + ch a e^{-\delta/\kappa T}}$$

ou encore :

$$(2') \quad \sigma = N \underbrace{\frac{\nu_1 H e^{\delta/\kappa T}}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}}_{\text{Niveau non magnétique}} + N \underbrace{\frac{\mu sh a}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} + N \frac{\nu_2 H ch a}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}}_{\text{Niveau magnétique}}$$

Corrélativement, la rotation paramagnétique a pour expression, A, B_1, B_2 , étant des constantes :

$$(3) \quad \rho = \frac{B_1 H e^{\delta/\kappa T}}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} + \frac{A sh a}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} + \frac{B_2 H ch a}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}.$$

IV. — *Définition du ferromagnétisme. Etude des conditions d'aimantation spontanée.*

Le ferromagnétisme est caractérisé par tout un ensemble de propriétés ; il convient cependant d'en préciser la définition. Cette définition me paraît imposée par la cause première, bien connue, du phénomène : l'existence d'une *aimantation spontanée*.

Nous devons donc commencer par chercher dans quelles conditions l'aimantation spontanée peut se produire, dans le cas d'un niveau non dégénéré suivi d'un niveau doublement dégénéré.

Le premier et le troisième terme de la formule (2') ne jouent aucun rôle dans la question de l'aimantation spontanée, puisqu'ils disparaissent en l'absence de champ extérieur H . La formule se réduit au second terme ; l'aimantation à saturation est $N\mu$, et la fraction de saturation $\frac{\sigma_1}{N\mu}$ a pour expression :

$$(4) \quad \frac{\sigma_1}{N\mu} = \frac{sh a}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} \quad \text{où } a = \frac{\mu H_m}{\kappa T}.$$

La courbe représentant $\frac{\sigma_1}{N\mu}$ en fonction de a est concave vers l'axe des a , tant que $\delta/\kappa T$ est inférieur à 1,3863 ($e^{\delta/\kappa T} = 4$). Pour les valeurs de $\delta/\kappa T$ plus grandes, elle est d'abord convexe, puis présente un point d'inflexion au delà duquel apparaît l'approche à la saturation ; on peut mener par l'origine une tangente dont le coefficient angulaire est supérieur à celui de la tangente à l'origine. La figure (1) représente les courbes obtenues pour les valeurs suivantes de $\delta/\kappa T$: 0 ; 1,3863 ; 4 ; 8.

Pour déterminer les conditions d'aimantation spontanée, nous suivrons une méthode graphique calquée sur celle par laquelle Pierre WEISS a rendu compte du ferromagnétisme. La différence essentielle est qu'au lieu d'une loi d'aimantation fonction de la seule variable a , nous avons ici une aimantation qui dépend de a et de $\delta/\kappa T$: il faut donc considérer le réseau des courbes fig. (1) au lieu d'une courbe unique.

Comme dans la théorie de WEISS, nous supposerons que le champ moléculaire est proportionnel à σ : on sait combien cette hypothèse a été féconde dans l'étude du ferromagnétisme et du paramagnétisme à champ moléculaire ; elle a été justifiée par la théorie de HEISENBERG, non comme loi rigoureuse, mais comme première approximation.

Soit n la constante du champ moléculaire : en l'absence de champ extérieur, la variable a est définie par la formule :

$$a = \frac{\mu}{\kappa T} H_m = \frac{\mu}{\kappa T} n \sigma_1,$$

qui peut s'écrire :

$$(5) \quad \frac{\sigma_1}{N\mu} = \frac{T}{n N\mu\mu/\kappa} a = \frac{H_s \mu/\kappa}{T} a$$

où $H_s = n N\mu$ représente le champ moléculaire qui correspond à la saturation absolue.

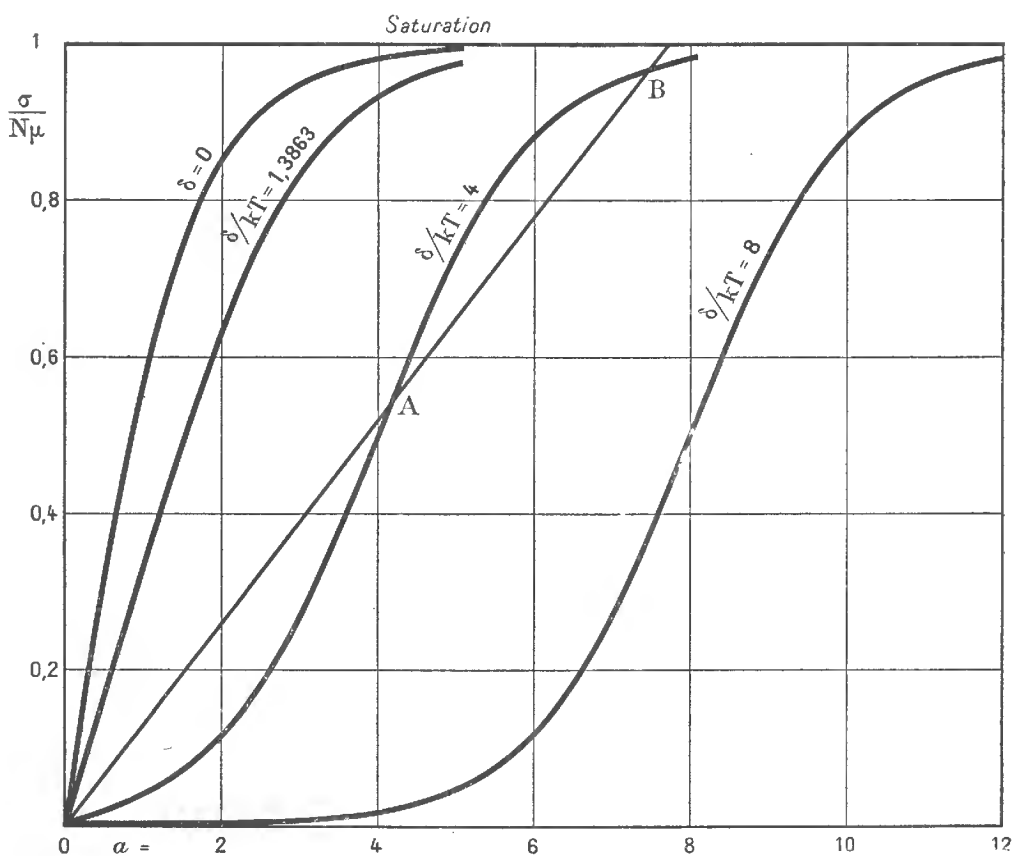


FIG. 1. — Fraction de saturation, pour un corps ayant un niveau fondamental non dégénéré, suivi d'un niveau doublement dégénéré, à la distance δ .

Si l'on se donne δ , les systèmes de valeurs de σ_1 et de T qui déterminent les aimantations possibles sous l'action du champ moléculaire seul sont donnés par les intersections de la courbe (4) et de la droite (5).

Tant que $\delta/\kappa T$ est inférieur à 1,3863, il n'y a d'aimantation spontanée que si H_s est assez grand pour que le coefficient angulaire de la droite (5) soit inférieur à celui de la tangente à l'origine à la courbe (4). L'état représenté par le point d'intersection est

stable¹, alors que l'état non aimanté est instable. Lorsque $\delta/\kappa T$ est supérieur à 1,3863, si le coefficient angulaire de la droite est compris entre ceux des deux tangentes qui passent par l'origine, il y a deux points d'intersection A et B (figure 1). L'état A est instable ; l'état B et l'état non aimanté sont stables.

Enfin, si le coefficient angulaire de la droite est inférieur à celui de la tangente à l'origine, l'état non aimanté est instable et il n'y a plus qu'un point d'intersection, qui donne un état stable.

Supposons que pour une valeur donnée de δ , il y ait une température Θ telle que la droite

$$(6) \quad \frac{\sigma_1}{N\mu} = \frac{\Theta}{H_s \mu / \kappa} a,$$

soit tangente à la courbe :

$$(7) \quad \frac{\sigma_1}{N\mu} = \frac{sha}{cha + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa\Theta}};$$

le calcul montre que pour toutes les températures inférieures à Θ la courbe (4) et la droite (5) se coupent en un point tel que B, et que l'aimantation correspondant à ce point croît à mesure que la température s'abaisse. La figure (2) représente, en fonction de $\frac{T}{\Theta}$

et pour quelques valeurs de $e^{\delta/\kappa\Theta}$, la fraction de saturation $\frac{\sigma_1}{N\mu}$ correspondant à ce point d'intersection. C'est une représentation analogue à celle qui est généralement donnée pour la variation thermique de l'aimantation spontanée dans les ferromagnétiques, mais ici on a un réseau de courbes au lieu d'une courbe unique. On remarque que si $\delta/\kappa\Theta$ est supérieur à 1,3863, l'aimantation prend brusquement une valeur finie, pour une température T infiniment peu inférieure à Θ .

Nous devons maintenant examiner sous quelle condition l'état représenté par le point B (fig. 1) est *thermodynamiquement stable*.

Cette question a été étudiée par M. H. A. KRAMERS, qui a bien voulu me communiquer les résultats qu'il a obtenus :

Il y a deux états stables : l'état non aimanté représenté par l'origine, et l'état B. Le plus stable est nécessairement celui auquel correspond l'énergie libre la plus petite.

La droite et la courbe, qui se coupent en deux points A et B, déterminent deux aires δ_1 et δ_2 respectivement comprises entre

1. Nous ne reproduisons pas le raisonnement bien connu. Voir par exemple : P. WEISS et G. FOEX, *le Magnétisme*, chap. VI (Armand Colin, édit.).

l'origine et le point A, et entre A et B : l'état aimanté B est le plus stable si $\delta_2 > \delta_1$, et l'inverse a lieu si $\delta_2 < \delta_1$.

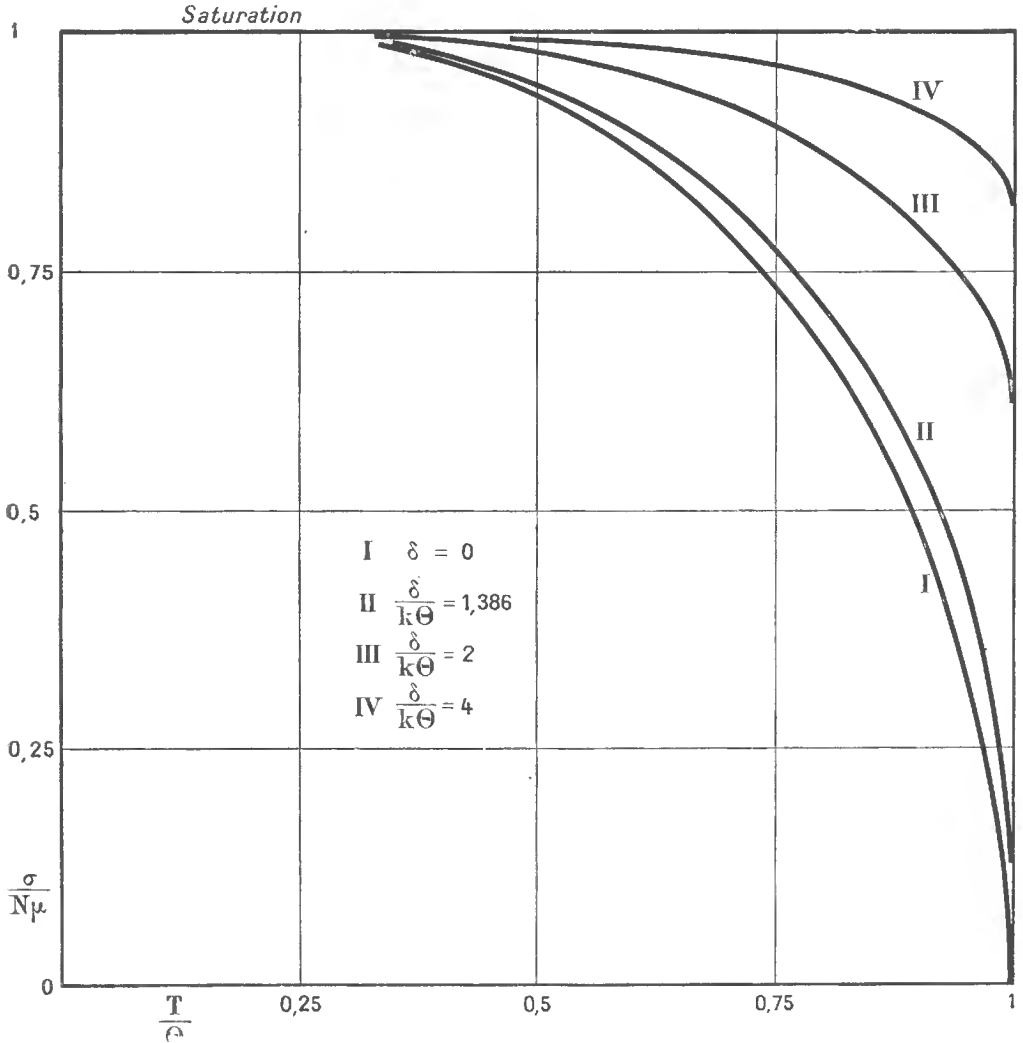


FIG. 2. — Variation thermique de la fraction de saturation.

L'égalité des deux aires détermine le point B au-delà duquel l'état aimanté est thermodynamiquement stable : cette condition conduit à la formule :

$$(8) \quad \text{Lognat} \frac{ch a_s + \frac{1}{2} e^{\delta/kT}}{1 + \frac{1}{2} e^{\delta/kT}} = \frac{1}{2} a_s \frac{sh a_s}{ch a_s + \frac{1}{2} e^{\delta/kT}}$$

où a_s est l'abscisse du point où commence la stabilité thermodynamique ; l'aimantation *spontanée* ne pourra se produire que si l'abscisse du point B est supérieure à a_s .

On déduit de la formule (8) que la valeur minima du coefficient n

du champ moléculaire, pour qu'il puisse y avoir aimantation spontanée, est :

$$(9) \quad n = 2 \frac{\delta}{N\mu^2},$$

ou, ce qui revient au même, que la [plus petite valeur de H_s doit être :

$$(10) \quad H_s = \frac{2 \delta}{\mu}.$$

Pour les valeurs de n , ou de H_s , plus petites l'aimantation spontanée ne se produit à aucune température, si basse soit-elle.

A partir de la formule de Kramers, le calcul montre que, pour une valeur donnée de δ , si l'aimantation spontanée est réalisée à une certaine température, elle se produit *a fortiori* à toutes les températures plus basses, et que la fraction de saturation augmente à mesure que la température s'abaisse. Ce résultat est capital pour la question qui nous occupe, comme nous le verrons au paragraphe suivant.

V. — Magnétisme et ferromagnétisme.

Revenons aux effets observés avec la mésitite, et supposons que ce cristal soit ferromagnétique aux températures de l'hélium.

Il convient de préciser la question : nous ferons d'abord l'hypothèse suivante :

Nous admettons que, comme dans les ferromagnétiques jusqu'à présent étudiés, en l'absence de tout champ extérieur la substance est *entièrement* divisée en domaines, dont chacun présente une aimantation spontanée *homogène*, mais dont les aimantations ont des orientations différentes.

Examinons s'il est possible de rendre compte du fait que, à 1,52° et dans un champ atteignant 30.000 g., la rotation croît plus vite que H , et qu'il n'apparaît aucun indice d'une approche à une valeur de saturation.

Ce résultat n'est pas, *a priori*, incompatible avec l'hypothèse qui précède, si toutefois les domaines sont assez loin de l'état de saturation ; car si les domaines sont peu aimantés, le champ extérieur augmentera leur aimantation, d'autant plus que le champ moléculaire croîtra en même temps. Sous l'action du champ extérieur, il y aurait alors à la fois orientation et accroissement d'aimantation des domaines et l'on conçoit que l'aimantation observée puisse croître plus vite que H , même dans des champs intenses.

Mais si les domaines sont presque saturés, des difficultés sur-

gissent : le fait qu'il n'apparaît aucune trace de saturation dans un champ de 30.000 g. révèle une dureté magnétique d'un ordre de grandeur tout autre que pour les autres ferromagnétiques, et qui paraît inacceptable. Sans doute la grandeur du champ coercitif serait l'indice d'une forte dureté magnétique, cependant ce champ coercitif est trop faible pour être en accord avec l'absence de saturation dans les champs intenses ; car si un champ de l'ordre de 2.000 g. est capable de provoquer le retournement des domaines, il est clair qu'un champ 15 fois supérieur devra donner une orientation quasi totale¹.

Dans l'hypothèse du ferromagnétisme de la mésitite, la question est donc de se rendre compte du degré d'aimantation des domaines.

Cette question est facilement résolue par l'examen des courbes de la figure 2. Si, pour une valeur donnée de δ , nous considérons la température Θ pour laquelle la droite (5) est tangente à la courbe (4), ce n'est que pour les valeurs de T inférieures à Θ qu'il y a intersection. Par conséquent, le point de Curie ferromagnétique, auquel apparaît l'aimantation spontanée, et qui correspond comme nous l'avons dit à l'égalité des aires S_1 , S_2 comprises entre la droite et la courbe, est plus bas que Θ .

Si l'aimantation rémanente de la mésitite, à 4,2° K, est liée à l'existence d'une aimantation spontanée, la température Θ est notablement au-dessus de 4,2° K. La figure 2 montre avec évidence qu'à 1,52° K, *quelle que soit la valeur de δ* , la saturation est pratiquement totale.

Pour les sidéroses, la question se présente avec plus de simplicité : aux températures de l'hydrogène², il a été constaté de l'hystérèse et une aimantation rémanente : le point de Curie ferromagnétique, et *a fortiori* la température Θ , devraient être au-dessus de 20° K. Les courbes figure 2 montrent encore que la saturation pourrait être considérée comme totale à toutes les températures de l'hélium. Or nous savons (§ I) qu'à ces températures l'influence du niveau magnétique ne se révèle plus, car on ne constate qu'une très légère rotation paramagnétique proportionnelle à H et indépendante de T , caractéristique de l'effet du niveau non dégénéré. La contradiction entre les faits et l'hypothèse ferromagnétique ne saurait être plus complète.

Une deuxième hypothèse est que les domaines aimantés n'occu-

1. Le champ coercitif véritable peut cependant être supérieur à sa valeur apparente si, en présence du champ H , le 1^{er} terme de la formule (2') a quelque importance. Mais l'examen des résultats montre qu'il ne dépasse pas 9.000 g ; même en admettant cette valeur, la tendance à la saturation devrait se manifester dans les champs intenses.

2. Pour la mésitite, je n'ai pas fait appel aux expériences, aux températures de l'hydrogène, car les niveaux d'énergie sont plus rapprochés que dans les sidéroses, et un troisième niveau pourrait intervenir, ce qui compliquerait beaucoup la discussion.

peraient pas tout le volume du cristal : il y aurait deux sortes de domaines ; ceux de 1^{re} espèce contenant des ions ferreux non magnétiques, ceux de 2^e espèce renfermant des ions magnétiques et spontanément aimantés. La théorie resterait la même, mais serait restreinte aux domaines de 2^e espèce. Mais cette hypothèse est aussi inadmissible que la précédente, car s'il y a aimantation spontanée dans un domaine à une certaine température, cette même région du cristal doit rester aimantée à toute température plus basse, et même acquérir une aimantation spécifique plus grande. L'aimantation des sidéroses ne devrait pas s'évanouir aux températures de l'hélium.

Il est donc certain que, au sens de la définition donnée au début du § 4, et *sous la réserve de la validité de l'hypothèse que le champ moléculaire est proportionnel à l'aimantation spécifique*, les sidéroses et la mésitite ne sont pas ferromagnétiques aux températures des expériences.

Cette réserve concernant le champ moléculaire interdit évidemment de rejeter d'une façon absolument certaine l'hypothèse ferromagnétique. Si, dans le cas actuel, l'hypothèse que $H_m = n\sigma$ est grossièrement fautive, on ne peut plus rien dire ; mais c'est une éventualité peu probable, et il est beaucoup plus vraisemblable de penser que nos conclusions sont exactes, au moins au point de vue qualitatif : le niveau fondamental oblige trop d'ions à rester dans l'état non magnétique, et les conditions sont telles que le champ moléculaire est insuffisant pour provoquer une aimantation spontanée.

Je pense donc qu'il y a *aimantation rémanente sans aimantation spontanée* : le métamagnétisme se présente comme un effet nouveau, apparenté si l'on veut au ferromagnétisme, mais cependant bien différent.

Une remarque est nécessaire : l'absence d'aimantation spontanée peut paraître paradoxale, puisque dans un champ nul le cristal reste aimanté, ce qui semble signifier que cet état aimanté est thermodynamiquement stable. La réponse est que rien n'autorise à croire que l'état d'aimantation rémanente est stable : au contraire, les observations sont d'accord avec l'idée d'une instabilité, car nous avons vu l'aimantation rémanente disparaître une fois, à 4,2° K, et une autre fois une diminution lente a été constatée. J'ai la conviction que si les expériences aux basses températures pouvaient être prolongées pendant un temps suffisamment long, on observerait toujours la disparition de l'aimantation rémanente.

En définitive, il convient de tenter une théorie toute différente de celle du ferromagnétisme. Ce sera l'objet des paragraphes suivants.

VI. — *Le paramagnétisme initial de la mésitite.*

Nous venons de montrer que l'hypothèse d'une aimantation spontanée n'est pas en accord avec les résultats expérimentaux. D'autre part, si le champ ne dépasse pas quelques milliers de gauss, il n'y a pas d'hystérèse appréciable. Nous sommes donc naturellement conduits à considérer la mésitite comme un corps simplement paramagnétique, du moins tant que ce cristal n'est pas soumis à un champ assez intense.

Aux températures suffisamment basses pour que les deux plus bas niveaux d'énergie puissent être considérés seuls, les lois de l'aimantation et de la rotation sont celles qui ont été données § III (formules 1 à 3). Pour interpréter les résultats des mesures, il s'agit d'abord de déterminer les constantes qui figurent dans la formule (3).

Nous ferons deux simplifications :

1° La diminution du pouvoir rotatoire magnétique entre les températures de l'hydrogène et celles de l'hélium, *très grande dans les champs faibles*, nous autorise à admettre qu'*aux températures de l'hélium, et dans les champs très peu intenses*, les ions Fe^{++} qui sont dans l'état magnétique (2^e niveau) sont tellement dilués qu'on peut faire abstraction du champ moléculaire, *du moins s'il n'y a pas d'aimantation initiale.*

La constante de VERDET¹ (coefficient angulaire de la tangente à l'origine à la courbe $\rho = f(H)$) a alors pour valeur :

$$(11) \quad V = \frac{B_1 e^{\delta/\kappa T}}{1 + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} + \frac{A \nu/\kappa T}{1 + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} + \frac{B_2}{1 + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}$$

2° Nous supposons que le troisième terme de cette formule est négligeable aux températures de l'hélium : cette hypothèse paraît légitime, car il a toujours été constaté qu'à des températures aussi basses, le terme de paramagnétisme fonction de la température prédomine de beaucoup ; autrement dit : B_1, B_2 doivent être petits vis-à-vis de $A \nu/\kappa T$; cependant le premier terme doit être conservé, à cause du facteur $e^{\delta/\kappa T}$.

Nous écrirons donc :

$$(12) \quad \rho = \frac{B_1 H e^{\delta/\kappa T}}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}} + \frac{A sh a}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}},$$

1. Dans ce qui suivra, les constantes de VERDET et les rotations seront rapportées à l'épaisseur 0,765 mm. de la lame utilisée dans les expériences.

$$(13) \quad V = \frac{B_1 e^{\delta/kT}}{1 + \frac{1}{2} e^{\delta/kT}} + \frac{A \mu/kT}{1 + \frac{1}{2} e^{\delta/kT}}.$$

La détermination des constantes δ , $A \mu/k$, B_1 , présente de sérieuses difficultés.:

1° Nous ne savons pas à partir de quelle température le troisième niveau d'énergie commence à donner des effets appréciables. Nous admettons qu'il ne se manifeste pas encore à 4,25° K, mais nous ne ferons pas intervenir les résultats obtenus aux températures de l'hydrogène liquide.

2° Dans les expériences, le cristal s'est toujours trouvé initialement aimanté, ayant conservé une aimantation rémanente parce qu'avant chaque série de mesures dans des champs croissants, il avait été soumis au champ maximum de sens opposé¹. Or la formule (13) suppose un état initial non aimanté.

L'examen des séries de mesures les plus sûres montre que, à température donnée, quels que soient la valeur et le sens de l'aimantation initiale, les tangentes des courbes $\rho = f(H)$, au point $H = 0$, sont parallèles entre elles. Il semble donc (au moins en première approximation) que dans les champs faibles, et dans ceux-là seulement, une aimantation proportionnelle à H (d'ailleurs réversible) s'ajoute à l'aimantation résiduelle. Nous devons remarquer que ce même résultat a été obtenu par W. J. DE HAAS et B. H. SCHULTZ pour le chlorure de cobalt². Il est alors légitime d'admettre que les tangentes à l'origine auraient encore le même coefficient angulaire si l'aimantation initiale était nulle³.

3° Il faut tenir compte de la rotation diamagnétique. J'ai admis qu'elle est la même que pour la calcite ($2,82 \cdot 10^{-5} H$, pour l'épaisseur 0,765 mm. de la lame); ce n'est qu'une très grossière approximation, mais la correction est faible et l'écart avec la valeur réelle est sans importance.

Les valeurs des constantes de Verdet auxquelles m'a conduit l'examen des meilleures séries de mesures sont les suivantes :

T° K.	1,60 ₀	2,50 ₁	3,32 ₂	4,25 ₀	
(14) V.	10 ₄	— 17,80 ₅	— 19,09	— 20,9	— 23,03 ₅ .

1. On a procédé ainsi, sans en soupçonner l'inconvénient, parce que l'étalement de H en fonction du courant dans les bobines de l'électro-aimant avait été fait dans ces conditions.

2. *Journal de Physique* S.VII TIX, janvier 1939.

3. Nous montrerons qu'une imprécision, même très grande, sur les valeurs des constantes ne compromet pas les conclusions générales auxquelles nous allons être conduits.

Adoptant les valeurs ci-dessus pour les températures de 1,60°, 2,50° et 4,25°, la formule (13) donne les constantes :

$$(15) \quad \frac{\delta}{\kappa} = 12,55 \quad B_1 = -8,832 \cdot 10^{-4} \quad A \frac{\mu}{\kappa} = -0,03166.$$

Avec ces constantes, on trouve pour V à 3,32₂° K la valeur — 21,09.10⁻⁴ qui diffère de 1 % de la valeur mesurée (moins précise que les autres).

On voit, d'après la grandeur de B₁, que le niveau non dégénéré donne une rotation assez forte, contrairement à ce qui se produit dans les sidéroses précédemment étudiées ; ce résultat n'a rien de surprenant, l'écart δ étant beaucoup plus petit dans la mésitite.

Dans les champs faibles, la part de la rotation due au niveau non dégénéré prédomine de beaucoup ; mais à mesure que le champ croît, la part due au niveau magnétique augmente très rapidement.

Enfin, la valeur de δ montre qu'aux températures de l'hélium, en l'absence d'aimantation, les ions Fe⁺⁺ qui se trouvent dans l'état magnétique sont très raréfiés : 8,6 % à 4,25° K et 0,078 % à 1,6° K.

VII. — *Le champ moléculaire.*

Il existe certainement un champ moléculaire : les effets d'hystérèse et d'aimantation rémanente en sont la preuve. Nous avons négligé ce champ quand il s'est agi des tangentes à l'origine aux courbes d'aimantation, parce que les ions magnétiques sont très raréfiés quand le champ extérieur est faible ; mais dès que l'aimantation atteint une valeur notable, nous devons tenir compte du champ moléculaire.

La question est fort complexe ; car nous ne sommes plus dans le cas, seul envisagé dans les travaux antérieurs, où le nombre des ions magnétiques par unité de masse est indépendant de la température et du champ extérieur.

Le champ moléculaire qui agit sur un ion dépend du nombre et de la disposition des ions magnétiques qui entourent l'ion considéré, et comme ici les ions magnétiques sont éparpillés au milieu d'ions ferreux non magnétiques, il y a un grand nombre de configurations à chacune desquelles correspond un champ moléculaire particulier. Pour une température T et un champ extérieur H donnés, on peut grouper par la pensée tous les ions qui ont des entourages identiques ; si p est le nombre de dispositions différentes, il y a 2 p valeurs possibles de la décomposition du niveau doublement dégénéré : la loi de l'aimantation doit être de la forme :

$$(16) \quad \sigma = N \frac{\nu, H e^{\delta/\kappa T} + \frac{1}{p} \mu \sum_1^p sh a_i}{\frac{1}{p} \sum_1^p ch a_i + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}; a_i = \frac{\mu}{\kappa T} (H + H_i)$$

N étant le nombre des ions ferreux par unité de masse, et les H_i les p champs moléculaires particuliers ($i = 1, 2 \dots p$).

La loi de la rotation a pour expression :

$$(17) \quad \rho = \frac{B_1 H e^{\delta/\kappa T} + \frac{1}{p} A \sum_1^p sh a_i}{\frac{1}{p} \sum_1^p ch a_i + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}.$$

Par définition, nous appellerons « champ moléculaire moyen » un champ H_m répondant à la condition :

$$(18) \quad sh a = sh \left[\frac{\mu}{\kappa T} (H + H_m) \right] = \frac{1}{p} \sum_1^p sh a_i.$$

Ce champ moléculaire moyen est fonction de T et de H.

$Ch a$ n'est pas égal à $\frac{1}{p} \sum_1^p ch a_i$, mais n'en diffère que peu¹, ou

du moins la différence est négligeable devant $1/2 e^{\delta/\kappa T}$; on peut donc écrire avec une excellente approximation :

$$(19) \quad \rho \approx \frac{B_1 H e^{\delta/\kappa T} + A sha}{ch a + \frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}}; a = \frac{\mu}{\kappa T} (H + H_m)$$

1. Si les a_i sont très petits, on peut confondre le Sh avec son argument, et le champ H_m est la moyenne des H_i ; dans ce cas $\frac{1}{p} \sum ch a_i$ et $ch a$ sont très voisins de 1.

Si les a_i sont assez grands, par exemple au moins égaux à 2,5, les sh . et ch . sont très voisins, de sorte qu'on a pratiquement $\frac{1}{p} \sum ch a_i = ch a$.

Enfin, dans les cas intermédiaires, S-KT la différence entre $\frac{1}{p} \sum ch a_i$ et $ch a$ est absolument négligeable devant $\frac{1}{2} e^{\delta/\kappa T}$ aux températures telles que 1,6° K. L'approximation reste suffisante à 4,2° K.

et le champ moléculaire moyen se présente comme la correction à apporter au champ extérieur pour que la loi simple du paramagnétisme soit satisfaite.

Il ne sera fait, pour le moment, aucune hypothèse concernant le champ H_m : nous le calculerons, car la formule (24) donne, pour toutes les rotations mesurées, la valeur de a et par suite celle de H_m , sous la condition de connaître A et μ , dont le produit a été déterminé par les constantes de Verdet.

Nous avons vu (§ II) que les deux états magnétiques comportent des moments de 2 et de 4 magnétons de Bohr. Nous supposons que l'état le plus rapproché de l'état fondamental est celui auquel correspond un moment de 2 magnétons, et que les ions ont leur moment orienté dans la direction de l'axe optique. Nous posons donc $\mu = 2 \mu_B$ ¹, et par suite $A = -236,1$: c'est une hypothèse

TABLEAU I

$T_{moy.} = 1,570_5^\circ \text{ K.}$

H	$-\rho_p^\circ$	$-\rho_1^\circ$	$-\rho_2^\circ$	a	H_m
Champs croissants					
— 104	— 4,77	— 0,18	— 4,59	— 4,071	— 47570
+ 5032	+ 6,53	+ 8,81	— 2,28	— 3,358	— 44360
10185	18,93	17,91	+ 1,02	+ 2,555	+ 19740
18939	41,12	32,19	8,94	4,756	36760
26467	69,67	41,09	28,58	6,008 ₅	43900
27488	75,54 ₅	41,56 ₅	33,98	6,028	45220
28372	79,94	42,08	37,86	6,336	45825
29386	85,54	42,45	43,09	6,490	46620
30196	90,93	42,38	48,55	6,640	47570
Champs décroissants	Champ coercitif environ 9000				
27483	79,71 ₅	40,46 ₅	39,05	6,379	47225
26517	75,73	39,71	36,02	6,277	46995
104	4,77	0,18	4,59	4,071	47570

1. Les valeurs les plus probables de la vitesse de la lumière, de la charge électrostatique de l'électron, du rapport e/m (e électromagnétique), et de la constante de Planck sont respectivement : $2,9978 \cdot 10^{10}$; $4,800 \cdot 10^{10}$; $1,7585 \cdot 10^{-7}$; $6,610 \cdot 10^{-27}$. Il en résulte les constantes suivantes, que nous adoptons ici :

$\mu_B = 0,92598 \cdot 10^{-20}$; $N = 6,0265 \cdot 10^{-23}$; $K = 1,3795 \cdot 10^{-16}$.

arbitraire ; nous l'admettrons pour le moment et nous la discuterons plus loin.

TABLEAU II

$T_{moy.} = 1,600^{\circ} \text{ K.}$

H	$-\rho_p$	$-\rho_1$	$-\rho_2$	a	H_m
Champs croissants					
— 90	— 2,48	— 0,16	— 2,32	— 3,232	— 38475
+ 1413	+ 0,27	+ 2,47	— 2,20	— 3,180	— 39355
2937	3,13	5,14 ₅	— 2,01 ₅	— 3,090	— 39805
5930	9,11	10,41	— 1,30	— 2,657	— 36540
8920	15,58	15,74	— 0,16	— 0,775	— 18170
12501	23,76	21,91	+ 1,85	+ 3,006	+ 23370
17731	36,14	30,58	5,56	4,119	31410
21590	48,08	36,22	11,86	4,904	37630
24257	57,52 ₅	39,60	17,92 ₅	5,345	39515
25696	64,49	40,84	23,65	5,648	41700
26190	67,48	41,09	26,39	5,771	42655
26907	71 88	41,39	30,49	5,935	43910
Champs décroissants					
Champ coercitif environ 9300					
26195	69,26	40,67	28,59	5,862	43745
25710	67,36 ₅	39,57	27,79 ₅	5,804	43540
24346	62,58	38,64 ₅	23,93 ₅	5,662	43210
21730	54,25	35,30 ₅	18,94 ₅	5,405	42760
18060	44,61 ₅	29,91 ₅	14,70	5,132	43170
12875	32,72	21,68	11,04	4,829	44740
9285	23,76	15,85	7,91	4,482	44185
6270	16,41	10,81	5,60	4,126	42965
3255	9,65	5,65	4,00	3,783	41880
1705	6,51	2,97	3,54	3,660 ₅	41970
90	3,16 ₅	0,16	3,00 ₅	3,494	41600

Nous ne passerons pas en revue toutes les séries d'expériences. Nous nous bornerons à donner les résultats obtenus à la température de $1,57^{\circ} \text{ K}$, jusque dans un champ de 30.200 g., ainsi que ceux de deux autres séries de mesures à $1,60^{\circ} \text{ K}$ et à $4,25^{\circ} \text{ K}$: ces derniers sont les plus complets au point de vue de l'étude de l'hystérèse.

Dans les tableaux ρ_p désigne, en degrés, la rotation paramagnétique totale (valeur mesurée, corrigée de la rotation diamagnétique). ρ_1 , ρ_2 représentent respectivement la part de la rotation due au

TABLEAU III

A. $T_{\text{moy.}} = 4,248^\circ \text{ K.}$ Champs croissants.

H	$-\rho_p$	$-\rho_1$	$-\rho_2$	a	H_m
— 90	— 2,24	— 0,14	— 2,10	— 0,0941	— 2890
1413	+ 1,41	+ 2,26	— 0,85	— 0,0381	— 2620
2934	4,86	4,69 ₅	+ 0,165	+ 0,0075	— 2695
5926	11,95	9,47	2,48	0,111	— 2412
8922	20,11	14,23	5,88	0,262	— 626
12542	30,66 ₅	19,85 ₅	10,81	0,472 ₅	+ 2424
17758	50,77	27,14	23,63	0,957	12552
21633	71,04	30,97	40,07	1,448	24231
24310	85,59 ₅	32,73 ₅	52,86	1,759	31412
25707	92,33 ₅	33,58	58,75 ₅	1,888	34112
26187	95,21	33,71	61,50	1,946	35460
26894	98,68	34,02	64,66	2,011	36815

Champ coercitif environ 2600 g.

B. $T_{\text{moy.}} = 4,248^\circ \text{ K.}$ Champs décroissants.

H	$-\rho_p$	$-\rho_1$	$-\rho_2$	a	H_m
26894	98,68	34,02	64,66	2,011	36815
26200	95,89	33,45	62,44	1,966	36065
25720	94,08	33,22	60,86	1,933	35510
24355	88,70	32,18 ₅	56,51 ₅	1,840	33930
21708	78,58	29,84	48,74	1,664	31000
18090	64,67	26,07	38,60	1,409	26535
12900	45,37 ₅	19,57 ₅	25,80	1,029	19705
9295	32,07	14,47 ₅	17,59 ₅	0,741	14180
6270	22,07	9,89 ₅	12,17 ₅	0,529	10475
3280	12,98	5,22	7,76	0,343 ₅	7600
1705	7,50	2,72	4,78	0,213	5050
90	2,24	0,14	2,10	0,0941	2890

niveau non dégénéré et la part due au niveau magnétique. Le champ coercitif est la valeur de H qui annule, non pas la rotation totale, mais la rotation ρ_2 .

C. $T = 4,246^\circ \text{ K}$. Montée à 20060.

H	$-\rho_p$	$-\rho_1$	$-\rho_2$	a	H_m
90	1,68 ₅	0,14 ₅	1,54	0,0691	2098
2191	6,35	3,50	2,85	0,1277	1850
4512	11,83	7,20 ₅	4,62 ₅	0,2068	2035
6680	16,84	10,65	6,19	0,2757	2050
8922	22,87	14 17 ₅	8,69 ₅	0,384	3235
15914	42,60	23 57	19,03	0,795	9.985
20061	63,80 ₅	29,43 ₅	34,37	1,293	20870

D. $T = 4,246^\circ \text{ K}$. Redescente à 90.

H	$-\rho_p$	$-\rho_1$	$-\rho_2$	a	H_m
20061	63,80 ₅	29,43 ₅	34,37	1,293	20870
15444	46,38 ₅	23,68	22,70 ₅	0,9264	13885
9167	25,24	14 51	10,73	0,4696	5705
6917	19,20 ₅	10,99 ₅	8,21	0,3631	4580
4627	12,71	7,38	5,33	0,2377	2900
2345	7,17	3,75	3,42	0,1532	2505
90	1,79	0,14	1,65	0,0740	2255

E. $T = 4,246^\circ \text{ K}$. Remontée à 10400.

H	$-\rho_p$	$-\rho_1$	$-\rho_2$	a	H_m
90	1,79	0,14	1,65	0,0740	2255
1450	4,97	2,32	2,65	0,1189	2315
3683	10,52 ₅	5,88 ₅	4,64	0,2074	2885
5186	13,71 ₅	8,27	5,44 ₅	0,243	2510
7424	19,35	11,81 ₅	7,53 ₅	0,334	3155
10402	26,99 ₅	16,48	10,51 ₅	0,461	4190

Les figures 3 et 4 représentent, en fonction du champ extérieur H, la rotation P_2 due à l'état dégénéré, et le champ moléculaire moyen, pour les températures de 1,57° K (Tabl. I), 1,60° (Tabl. II) 4,25° (Tabl. III).

F. T = 4,246. Redescente à 90.

H	— ρ_p	— ρ_1	— ρ_2	a	H_m
10402	26,99 ₅	16,48	10,51 ₅	0,461	4190
7416	19,07	11,80 ₅	7,26 ₅	0,3225	2790
5185	13,54 ₅	8,27	5,27 ₅	0,2355	2275
3686	10,60 ₅	5,89	4,71 ₅	0,2107	2985
1460	5,31	2,33 ₅	2,97 ₅	0,1334	2765
90	1,45	0,14	1,31	0,0885	1765

G. H. T = 4,246° K.

Hystérèse dans les limites 7750 — 20060 g.

H	— ρ_p	— ρ_1	— ρ_2	a	H_m
7747	20,62	12,31 ₅	8,30 ₅	0,367	3880
10630	27,94	16,81 ₅	11,12 ₅	0,486	4760
15396	42,07 ₅	23,94 ₅	18,13	0,762	8735
20067	61,63 ₅	29,74 ₅	31,89	1,220	18570
15643	45,91	24,05	21,86	0,897	12750
10837	29,77 ₅	17,08 ₅	12,69	0,550	6585
7954	21,58 ₅	12,63	8,95 ₅	0,395	4550

Les résultats essentiels concernant le champ moléculaire moyen H_m sont les suivants :

1° *Le cristal étant initialement aimanté et soumis à des champs faibles croissants, le champ moléculaire moyen reste à peu près constant.*

Ce résultat est particulièrement net sur les courbes qui représentent H_m à la température de 4,25° K.

2° Aux plus basses températures (1,057 ; 1,060), si l'aimantation initiale est de sens opposé à celle que provoque le champ extérieur, dans un champ H progressivement croissant, il arrive un moment où H_m passe très rapidement d'une grande valeur négative (sens de l'aimantation initiale) à une grande valeur positive (sens du champ extérieur).

3° Dans les champs H intenses, les courbes représentant H_m deviennent concaves du côté de l'axe des H . Le champ moléculaire moyen semble tendre asymptotiquement vers une limite qu'on peut grossièrement estimer être de l'ordre de 60.000 g.

4° Toujours aux plus basses températures, si l'on fait décroître le champ extérieur H , le champ moléculaire moyen reste sensiblement constant jusqu'à l'annulation du champ H . Ainsi, pour l'aimantation

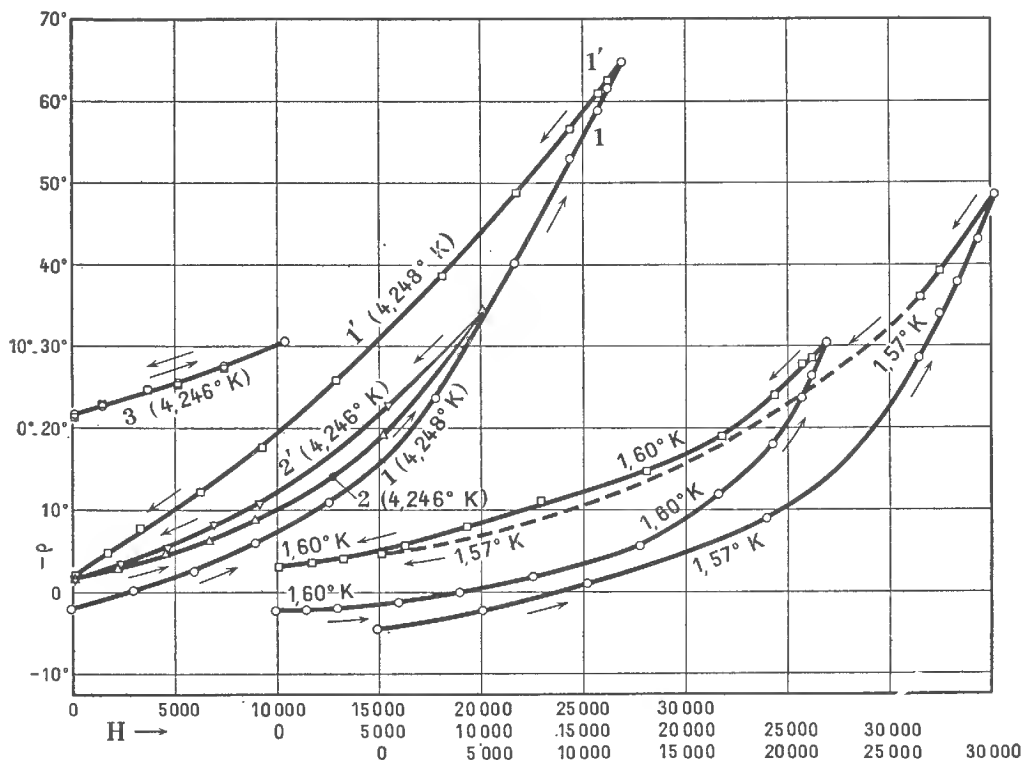


FIG. 3. — Rotation due à l'état magnétique, en fonction du champ extérieur (l'origine des abscisses a été déplacée de 10.000 pour la courbe qui correspond à $T=1,60^\circ \text{K}$., et de 15.000 pour celle qui correspond à $T=1,57^\circ \text{K}$. Pour la courbe 3, l'origine des ordonnées est relevée de 20° .)

rémanente, le champ H_m est resté à peu près le même que pour l'état d'aimantation maximum.

Ce résultat, qui à première vue semble paradoxal, est le fait capital qui est la clef de l'explication du métamagnétisme, comme nous le montrerons dans le paragraphe suivant.

Dans les expériences à $1,60^\circ \text{K}$., il semble y avoir eu une légère décroissance de H_m pour les champs H inférieurs à 6.300 g. Cette diminution, si elle est réelle, pourrait être due à l'instabilité des états obtenus.

La constance, au moins approximative, du champ moléculaire, ne se produit qu'aux températures très basses. A $4,2^\circ \text{K}$, elle n'a plus du tout lieu, comme on le voit dans le tableau III et sur la figure 4.

Nous avons admis jusqu'ici l'exactitude des valeurs trouvées pour les constantes (§ VI (15)), et supposé que $\mu = 2 \mu_B$. Si l'on fait varier les valeurs de μ , δ , A dans de larges limites, dépassant les écarts admissibles, on trouve que les résultats généraux ne sont

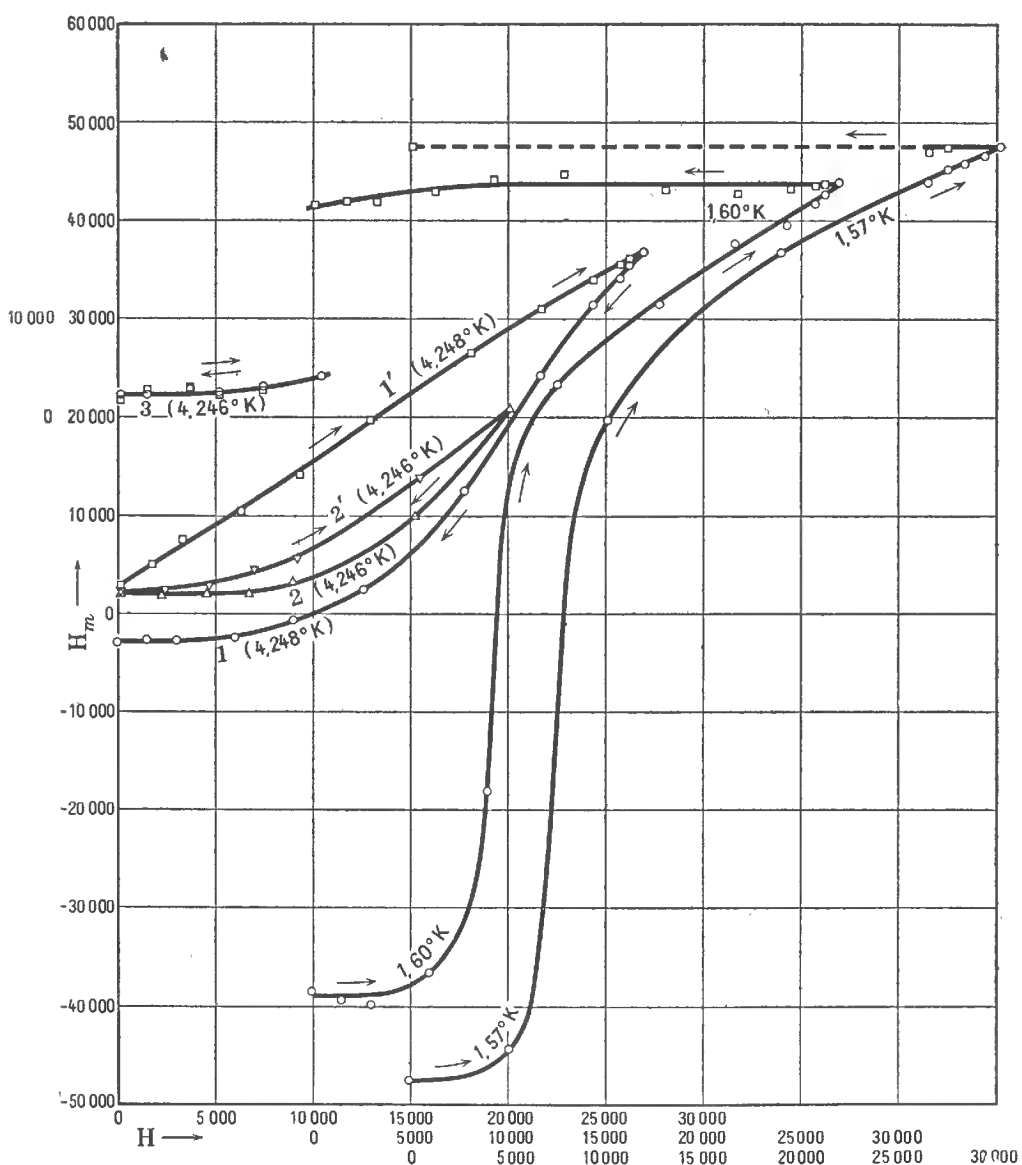


FIG. 4. — Champ moléculaire moyen, en fonction du champ extérieur (l'origine des abscisses a été déplacée de 10.000 pour la courbe qui comprend à $T = 1,60^\circ \text{K}$ et de 15.000 pour celle qui comprend à $T = 1,57^\circ \text{K}$. Pour la courbe (3) l'origine des ordonnées est relevée de 20.000.)

pas changés : une discussion donnée en appendice à la fin du présent mémoire permet d'affirmer que, dans l'aimantation rémanente à $1,57^\circ \text{K}$, le champ moléculaire moyen reste de l'ordre de grandeur de celui qui règne dans l'état de plus grande aimantation, bien que l'aimantation rémanente ne soit qu'une faible fraction de celle

acquise dans le champ maximum. Par contre, à 4°2, la décroissance de H_m est considérable.

Ainsi, même en supposant de fortes erreurs dans la détermination des constantes, il est certain que, dans les champs extérieurs décroissants, le champ moléculaire diminue de moins en moins à mesure que la température s'abaisse. Bien qu'une extrapolation soit toujours risquée, il est permis de penser que la constance de H_m a bien lieu à des températures suffisamment basses.

VIII. — *Les domaines aimantés : leur formation progressive sous l'influence des champs croissants.*

Nous devons d'abord chercher la signification de la constance du champ moléculaire moyen, dans l'effet d'hystérèse.

Nous avons défini H_m par la condition (§ VII (18)) :

$$(20) \quad sh \left(\frac{\mu H}{\kappa T} + \frac{\mu H_m}{\kappa T} \right) = \frac{1}{p} \sum_{i=1}^p sh \left(\frac{\mu H}{\kappa T} + \frac{\mu H_i}{\kappa T} \right).$$

Développant les $sh.$, cette formule s'écrit :

$$(21) \quad sh \frac{\mu H}{\kappa T} \left[ch \frac{\mu H_m}{\kappa T} - \frac{1}{p} \sum_1^p ch \frac{\mu H_i}{\kappa T} \right] \\ = ch \frac{\mu H}{\kappa T} \left[\frac{1}{p} \sum_1^p sh \frac{\mu H_i}{\kappa T} - sh \frac{\mu H_m}{\kappa T} \right]$$

Gardons les valeurs précédemment adoptés pour les constantes : dans l'effet d'hystérèse aux températures de l'ordre de 1,6° K, H_m dépasse 40.000, et l'argument $\frac{\mu H_m}{\kappa T}$ est assez grand pour qu'on puisse confondre son sh et son ch . (à 2 % près si $T = 1,6^\circ$ $\mu = 2\mu_B$ $H_m = 42.000$) ;¹ nous pouvons alors écrire (21) sous la forme suivante :

$$(22) \quad sh \frac{\mu H_m}{\kappa T} = \frac{1}{p} \sum_1^p sh \frac{\mu H_i}{\kappa T} + \varepsilon \frac{sh \frac{\mu H}{\kappa T}}{sh \frac{\mu H}{\kappa T} + ch \frac{\mu H}{\kappa T}}$$

1. Si l'on suppose un moment μ plus petit, H_m déduit des mesures a une valeur plus grande, et la température à laquelle la constance de H_m serait réalisée serait plus basse. La valeur de $\frac{\mu H_m}{\kappa T}$ est suffisamment grande dans tous les cas.

en posant

$$(23) \quad \varepsilon = \frac{1}{p} \left(\sum_1^p ch \frac{\mu H_i}{\kappa T} - \sum_1^p sh \frac{\mu H_i}{\kappa T} \right),$$

Or la plus grande valeur de ε (obtenu si tous les H_i étaient nuls) est 1, mais ε sera généralement beaucoup moindre ; d'autre part, à 1°6, quand H décroît de 30.000 à zéro, $sh \frac{\mu H}{\kappa T} / sh \frac{\mu H}{\kappa T} + ch \frac{\mu H}{\kappa T}$ varie de 0,497 à 0. Le 2^e terme de (22) est donc très petit vis-à-vis de $sh \frac{\mu H_m}{\kappa T}$ (= 16,9 à 1,6° K pour $H_m = 42.000$). Par conséquent, la constance de H_m signifie que $\sum sh \frac{\mu H_i}{\kappa T}$ reste constante.

Sans doute, il ne s'en suit pas forcément que les H_i restent individuellement constants, mais il est cependant tout à fait invraisemblable qu'ils varient précisément de manière que $\sum sh \frac{\mu H_i}{\kappa T}$ soit invariable. Logiquement, la constance de H_m signifie que les divers champs moléculaires ne varient pas malgré la décroissance du champ extérieur et jusque dans un champ nul.

Il est évident que cela signifie que la concentration des ions magnétiques, leurs dispositions et leurs orientations relatives, acquises dans le champ H maximum, ne changent pas. (en moyenne).

Cependant l'aimantation spécifique *du cristal* diminue beaucoup quand H décroît : Cela ne peut se concilier avec la constance des H_i que par l'existence de domaines aimantés, dont l'aimantation spécifique reste constante, mais dont le volume diminue. — Ces domaines ne sont donc pas contigus ; ce sont des groupements d'ions magnétiques séparés par des régions où l'aimantation est probablement très faible.

Dès lors, le mécanisme de l'aimantation métamagnétique est le suivant : le cristal étant supposé initialement non aimanté, aux températures de l'hélium la plupart des ions ferreux sont dans l'état fondamental non dégénéré. Quand on produit le champ H , le niveau suivant se divise en deux niveaux dont l'un se rapproche du niveau fondamental, de sorte que le nombre des ions magnétiques augmente, en même temps que croît la proportion de ceux dont le moment est orienté dans le sens de H . Il y a immédiatement tendance à la formation de groupements d'ions magnétiques orientés : en effet, pour les ions restés dans l'état fondamental et voisins d'ions magnétiques, la probabilité de passage à l'état magnétique est plus grande que pour ceux qui n'ont pas de voisins magnétiques, parce qu'une paire d'ions magnétiques voisins a une énergie moindre

qu'une paire d'ions magnétiques éloignés. C'est là l'origine du métamagnétisme, qui apparaît comme essentiellement lié à la dissémination des ions magnétiques au milieu de ceux qui sont dans l'état non dégénéré.

A mesure que H augmente, la concentration des ions magnétiques devient plus grande dans les domaines, comme le prouve l'accroissement du champ moléculaire¹. Ce champ doit tendre vers un maximum, correspondant à la *saturation des domaines*, qu'il ne faut pas confondre avec la *saturation du cristal* (bien que les intensités d'aimantation à saturation soient les mêmes) : effectivement, on constate pour H_m cette approche à une valeur limite, alors que pour l'aimantation macroscopique du cristal, il n'y a encore aucun indice de saturation.

IX. — *Les variations du volume occupé par les domaines aimantés et la condition de réversibilité de l'aimantation du cristal.*

Il ne paraît pas possible de donner une définition géométrique du volume occupé par les domaines, car ceux-ci ne sont probablement ni uniformément aimantés, ni nettement délimités. On peut cependant donner une définition conventionnelle, en considérant un volume tel qu'il y ait proportionnalité entre son intensité moyenne d'aimantation et le champ moléculaire moyen.

Soient N le nombre des ions ferreux par unité de volume, n la constante du champ moléculaire, H_s le champ moléculaire à saturation, I l'intensité moyenne d'aimantation des domaines, i l'intensité d'aimantation macroscopique du cristal. Nous écrivons :

$$(24) \quad \left\{ \begin{array}{l} \text{Pour le cristal} \\ \text{Pour les domaines,} \end{array} \right. \left\{ \begin{array}{l} \frac{i}{N\mu} = \frac{\rho_2}{A}, \text{ car ces rapports représentent tous} \\ \text{deux la fraction de saturation du cristal.} \\ H_m = nI; H_s = nN\mu \text{ (car l'intensité à saturation est } N\mu \text{).} \end{array} \right.$$

Nous en déduisons :

$$(25) \quad \frac{i}{I} = \frac{\rho_2}{A} \frac{H_s}{H_m}.$$

Ce rapport est encore égal au rapport σ/Σ des intensités spécifiques (par unité de masse), la densité pouvant être considéré comme constante.

1. Dans les champs intenses, les ions magnétiques sont pour ainsi dire tous orientés dans le sens de H ; l'accroissement de H_m ne peut provenir que d'un accroissement de leur concentration.

Par définition, nous appellerons $i/I = \sigma/\Sigma$ la fraction du volume du cristal occupée par les domaines. Il est évident que les variations de ce rapport nous renseigneront sur le plus ou moins d'étendue occupée par les régions où se concentrent les ions magnétiques.

Les courbes (fig. 4) donnent pour H_s un ordre de grandeur de

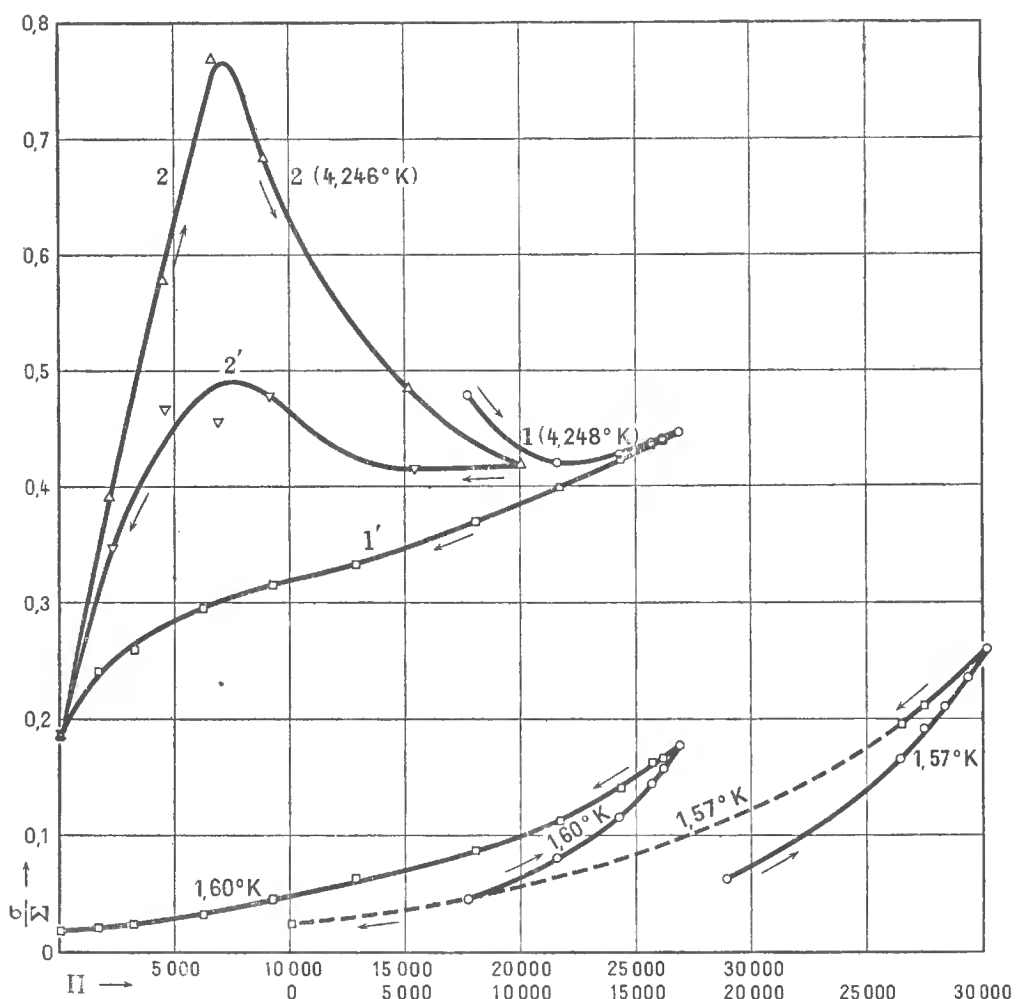


FIG. 5. — Représentation, en fonction du champ extérieur, du volume occupé par les domaines aimantés. (Pour la courbe qui correspond à $T = 1,57^\circ \text{K}$ l'origine des abscisses a été déplacée de 10.000).

60.000 ; nous adopterons cette valeur : elle n'est pas du tout précise, mais pour les variations il importe peu que σ/Σ ne soit connu qu'à un facteur constant près.

La figure (5) représente σ/Σ en fonction de H aux températures de 1,60° et 1,57° K. Dans les champs faibles croissants, le calcul de σ/Σ par (25) n'a pas de signification, parce que l'aimantation initiale ($H = 0$) s'est trouvée de sens opposé au sens de H ; quand H croît à partir de zéro, on ne voit pas comment décrire la destruction des domaines résiduels, ni leur remplacement par des domaines aimantés

dans le sens de H : il y a là une transition dont le mécanisme ne saurait être précisé ; la formule (25) n'a donc de signification que si les domaines sont nettement formés. Aussi, pour les champs croissants, n'avons-nous tracé les courbes qu'au delà de 17.000 g.

On voit que l'étendue des domaines varie beaucoup ; par exemple, à $1,57^\circ$ K, de 0,26 en A pour le maximum, jusqu'à 0,018 en B pour l'aimantation rémanente. Dans un champ donné H , le volume total des domaines est toujours plus grand au retour qu'à l'aller.

À $4,25^\circ$ K, les effets sont beaucoup plus compliqués. Sur la figure (5), la courbe 1 correspond aux champs croissants de 17.800 à 27.000, et le retour jusqu'au champ nul est représenté en 1'. De 17.800 à 22.000, alors que le champ moléculaire (fig. 4) et l'aimantation spécifique des domaines croissent rapidement, le volume des domaines diminue, d'abord très vite, puis de plus en plus lentement : l'accroissement d'aimantation du cristal est dû à la forte augmentation de l'aimantation spécifique des domaines ; mais au-delà de 22.000 g, l'aimantation des domaines manifeste une approche à la saturation ; en même temps leur étendue, qui est passée par un minimum, croît légèrement : l'aimantation du cristal augmente maintenant à la fois par accroissement de l'aimantation et du volume des domaines.

Au retour (1') l'étendue des domaines décroît constamment, et très vite dans les champs faibles. Ici, contrairement à ce qui a lieu à $1,6^\circ$ K le volume occupé par les domaines est plus petit au retour qu'à l'aller.

Les courbes 2, 2' (même figure), obtenues en faisant remonter H jusqu'à 20.000 g. sont instructives, parce que, les domaines résiduels étant aimantés dans le même sens que H , la représentation de σ/Σ peut être donnée dans les champs faibles croissants. De zéro à 7.200 g. environ, tant que l'aimantation spécifique des domaines reste sensiblement constante (H_m constant, figure (4) courbe (2)), les domaines s'étendent d'une façon considérable, de 0,18 à 0,76, c'est-à-dire qu'ils occupent pour $H = 7.200$ environ les $3/4$ du volume du cristal. Au-delà de 7.200, H_m commence à croître rapidement ; en même temps l'étendue des domaines diminue, et l'on voit, pour $H = 20.000$, l'approche au minimum trouvé sur la courbe 1.

Le plus intéressant est la variation de forme de la courbe de retour, quand on part de valeurs différentes du champ maximum.

1. Dans cette région, les erreurs expérimentales se traduisent par une grande incertitude sur la valeur de σ/Σ ; aussi les points marqués, qui représentent les valeurs calculées d'après les mesures, se placent-ils irrégulièrement. L'existence du maximum ne fait cependant aucun doute. La courbe tracée a été obtenue en substituant aux points expérimentaux les points déterminés sur la courbe des rotations, qu'on peut tracer assez correctement.

La courbe (1'), partant de $H = 27.000$, a des ordonnées constamment décroissantes, mais par son inflexion elle manifeste une velléité de passer par un maximum pour un champ H de l'ordre de 7.000 à 8.000. Si maintenant on revient de 20.000 g (courbe 2'), le maximum est réalisé, et il est même très prononcé ; il est bien dans la région $H = 7.000$. Ainsi, quand le champ maximum n'est pas trop intense, la courbe de retour prend une allure semblable à celle de la courbe d'aller, ces deux courbes ayant un maximum pour des champs égaux ou peu différents. ¹ On se rend compte, par continuité, que *plus la valeur du champ maximum sera faible, plus la courbe de retour se rapprochera de la courbe d'aller* ; enfin, que si le champ H ne dépasse pas la valeur à laquelle correspond le maximum d'extension des domaines, les deux courbes seront probablement confondues.

Effectivement, dans la série de mesures faites entre zéro et 10.400 g. (tableau III, séries E et F) Courbes (3) des figures (3) et (4)) l'hystérèse a été trop peu prononcée pour pouvoir être constatée.

D'après cette analyse *la condition de réversibilité paraît être que l'aimantation spécifique moyenne des domaines reste invariable, et par conséquent que les variations de l'aimantation du cristal soient dues seulement à la plus ou moins grande extension des domaines.* Ce résultat est tout à fait naturel, car si les domaines ne changent que par leur plus ou moins grande extension, on conçoit que la réversibilité (ou du moins une quasi réversibilité) puisse se produire. Le fait que notre théorie rend compte très simplement de la réversibilité constatée dans les champs faibles est un sérieux appui en sa faveur.

Aux températures de l'ordre de 1^o,6 il devrait y avoir aussi réversibilité approximative quand on passe d'un champ très intense au champ nul et qu'on remonte ensuite au champ intense. Malheureusement l'expérience, qui serait encore plus probante pour la théorie, n'a pas été faite.

X. — *L'hystérèse et l'aimantation rémanente.*

Les résultats qui précèdent rendent compte immédiatement du mécanisme de l'hystérèse. Pour une valeur donné de H , le cristal est dans des conditions bien différentes à l'aller et au retour. Lorsque le champ est croissant, les domaines sont en formation ; ils possèdent une aimantation spécifique et une étendue déterminées par la valeur de H (mais non d'une façon univoque puisqu'il y a, d'une série d'expériences à une autre, des différences qui dépassent les erreurs d'expérience). Au retour, les domaines sont en destruction,

à partir des états qui ont été créés par le champ maximum. Aux températures suffisamment basses, cette destruction se fait à aimantation spécifique sensiblement constante, par évanouissement progressif jusqu'à un résidu qui donne l'aimantation rémanente du cristal, à 4,2° K les effets sont plus compliqués, les domaines pouvant, selon les circonstances, augmenter ou diminuer de volume pendant que leur aimantation spécifique décroît d'une façon continue. Ce n'est là d'ailleurs qu'une description, et non une explication de l'hystérèse.

L'aimantation rémanente est nécessairement instable, car s'il en était autrement le cristal serait ferromagnétique et cela entraînerait les contradictions indiquées § V. On peut vérifier facilement que la condition d'aimantation spontanée n'est pas satisfaite¹.

Un effet bien remarquable, qui reste inexplicé, est l'énormité du temps de relaxation observé dans l'aimantation. Voici une hypothèse qui mérite peut-être d'être envisagée : la relaxation ne s'observe que dans des champs assez intenses ; n'y aurait-il pas, dans ces champs, des substitutions entre ions Fe et ions Mg, soit dans la même maille élémentaire, soit dans des mailles voisines ? Car les ions magnétiques doivent avoir tendance à se rapprocher parce qu'il en résulte une diminution de l'énergie. L'aimantation se produirait alors en deux temps : la phase principale très rapide, et une phase lente, due au temps nécessaire pour ces substitutions, d'autant plus long que la température est plus basse, comme le prouve l'expérience.

XI. — *Le métamagnétisme, comparé au ferromagnétisme.*

Le seul point commun est l'existence de domaines aimantés ; mais tandis que dans les ferromagnétiques ces domaines préexistent, dans le métamagnétisme ils sont créés par le champ. Ces groupements d'ions magnétiques n'occupent qu'une partie du volume du cristal, et leurs résidus quand on annule H sont instables.

Sans doute, dans le fer, on constate aussi que l'aimantation rémanente peut disparaître, mais l'effet a une tout autre cause : dans le fer, des domaines spontanément aimantés reprennent des orientations quelconques ; ici les domaines se détruisent.

Nous n'avons aucune donnée qui permette d'évaluer les dimensions des domaines. Toutefois, la pureté du phénomène optique exige que le cristal soit magnétiquement homogène, à l'échelle de

1. Avec les constantes adoptées, le champ moléculaires à saturation H_s nécessaire pour que le point de Curie ferromagnétique soit au zéro absolu est 187.000. Or ici H_s est de l'ordre de 60.000. La mésilite ne doit être ferromagnétique à aucune température, si basse qu'elle soit.

la longueur d'onde, et par conséquent que ces domaines soient très petits, et à peu près uniformément répartis.

Si l'on pouvait porter et maintenir tous les ions ferreux dans l'état dégénéré, le champ moléculaire serait plus que suffisant pour provoquer le ferromagnétisme aux températures de l'hélium, mais la réalité est autre : la mésitite ne demanderait qu'à être ferromagnétique, mais elle ne peut y parvenir, parce que l'existence d'un niveau d'énergie inférieur non dégénéré oblige trop d'ions à rester dans un état non magnétique, précisément aux températures où le ferromagnétisme pourrait apparaître ; de sorte que le caractère essentiel du ferromagnétisme, l'aimantation spontanée, fait défaut.

MM. W. J. DE HAAS et B. H. SCHULTZ pensent que les effets qu'ils ont observés, aux températures de l'hydrogène liquide, avec le chlorure de cobalt, sont métamagnétiques. Je le pense également, mais il est nécessaire de souligner une différence essentielle entre l'ion Co^{++} et l'ion Fe^{++} : le Co^{++} , ayant un nombre impair d'électrons ne peut pas avoir d'états non dégénérés (théorème de KRAMERS) ; ce n'est d'ailleurs pas une objection, car si l'état fondamental est bien moins magnétique que l'état suivant, on conçoit que le métamagnétisme puisse se produire.

APPENDICE.

Il est nécessaire d'examiner quelle peut être l'influence, sur la validité des conclusions, de l'incertitude qui subsiste sur les valeurs des constantes δ , μ , A_1 , B_1 .

Il a été admis, arbitrairement, que l'état dégénéré qui suit l'état fondamental est celui auquel correspond un moment de 2 magnétons, et que les ions ont leurs moments orientés parallèlement à l'axe optique du cristal. La seule raison qu'on puisse invoquer en faveur de cette hypothèse est que, ce n'est probablement pas par hasard que cette orientation privilégiée conduit à un résultat particulièrement simple (la constance de H_m dans l'hystérèse aux très basses températures) ; mais ce n'est pas là une justification sérieuse.

Nous devons donc chercher ce que donneraient des valeurs variées de μ . Admettons pour le moment l'exactitude des constantes δ , A^μ/k , B_1 , déterminées au § VI. Soient H_{m1} , H_{m2} , les champs moléculaires calculés pour $H = 30.196$ et $H = 104$, à $1,570^{\circ}_5$ K ; on obtient, pour diverses valeurs de μ , les résultats portés dans le tableau IV.

Une valeur de μ supérieur à $2\mu_B$ paraît impossible, car il n'est pas vraisemblable que H_m puisse augmenter quand H passe de 30.000 à zéro ; la valeur $0,5 \mu_B$ est exagérément basse, et cependant on

voit que H_{m_2} reste très grand. On peut dire que, quelque soit μ , le champ H_{m_2} reste de l'ordre de grandeur de H_{m_1} .

TABLEAU IV.

$\frac{\mu}{\mu_B}$	H_{m_1}	H_{m_2}	H_{m_1}/H_{m_2}
0,5	197.880	124.940	1,58
1	102.715	78.770	1,30
1,5	66.725	528.890	1,13
2	47.750	47.570	1,00
2,5	35.700	40.175	0,89

Voyons maintenant quelle est l'importance de l'erreur sur l'écart δ . Conservons les valeurs trouvées (§ VI) pour les constantes de Verdet à 1,60° K et à 4,25° K, qui paraissent plus précises que la valeur obtenue pour 2,5° K, et prenons pour δ/K la valeur 10, puis la valeur 14, qui paraissent être les limites en dehors desquelles il y aurait trop de désaccord entre $V_{\text{calc.}}$ et $V_{\text{mesurée}}$ à 2,5° K δ/K étant donné, les constantes à 1,6 et 4,25° K. déterminant A^μ/K et B_1 . On trouve les résultats inscrits dans le tableau V.

TABLEAU V.

$\delta/K = 10$				$\delta/K = 14$			
$\frac{\mu}{\mu_B}$	H_{m_1}	H_{m_2}	$\frac{H_{m_1}}{H_{m_2}}$	$\frac{\mu}{\mu_B}$	H_{m_1}	H_{m_2}	$\frac{H_{m_1}}{H_{m_2}}$
0,5	141.035	67.730	2,08	0,5	228.670	156.990	1,46
1	73.640	49.435	1,49	1	117.480	94.770	1,24
1,5	49.895	38.955	1,28	1,5	76.050	69.540	1,09
2	36.225	32.645	1,11	2	54.070	55.546	0,97

Nous pouvons donc dire que, quelles que soient les valeurs admises pour δ et pour μ , le champ moléculaire reste très grand dans l'aimantation rémanente, bien que celle-ci ne soit qu'une très petite fraction de l'aimantation acquise dans le champ maximum.

Il reste enfin à examiner, pour δ donné, l'influence que peut avoir une erreur commise dans la détermination de A^μ/K . Les constantes de VERDET à 1,6° et 4,25° k sont mesurées avec une

bonne précision, mais la valeur de $A u/u$ à laquelle elles conduisent par application de la formule (13) donne, à $14,2^\circ$ K, une constante de Verdet calculée bien inférieure à la valeur expérimentale. L'écart peut tenir en partie aux simplifications que nous avons faites (§ VI), qui peuvent n'être plus légitimes aux températures de l'hydrogène liquide (la formule (13) ne tient pas compte du 3^e terme de (11) et elle suppose que le champ moléculaire est négligeable si le champ extérieur est très faible, ce qu'on ne peut plus admettre quand les ions magnétiques sont plus concentrés) ; mais la majeure partie de cet écart provient probablement d'une intervention, à $14,2$ K, du troisième niveau d'énergie, qui est sans doute très magnétique ; alors, si ce 3^e niveau agit notablement à 14° , il est possible qu'il ait encore une influence non négligeable à $4,25^\circ$ K ; s'il en est ainsi, la formule (13) où il n'est tenu compte que des deux plus bas niveaux, doit conduire à des valeurs de A^μ/κ trop grandes. Quant à la valeur de B_1 , elle reste toujours bien déterminée.

Si l'on refait les calculs en abaissant, par exemple de 50 %, les valeurs trouvées par (13) pour A^μ/κ (δ variant de 10 à 14), on obtient des tableaux analogues à IV et V, et l'on trouve des résultats du même ordre. Le peu d'influence d'une erreur sur A se comprend facilement d'après la formule (12) : a étant suffisamment grand, on peut confondre $sh a$ et $ch a$ avec $\frac{1}{2} l^a$ et écrire :

$$a = \frac{\rho}{\kappa T} + \text{Log}_{nat} (\rho - B_1 H) - \text{Log}_{nat} (A - \rho)$$

$$H_m = \frac{a}{\mu/\kappa T} - H.$$

Aux températures très basses le terme $\delta/\kappa T$ prédomine de beaucoup, et une erreur sur A qui figure dans un Log. est de peu d'importance.

En définitive, nous sommes conduits aux conclusions données à la fin du § VII.

Le Gérant, R. TAVENEAU.